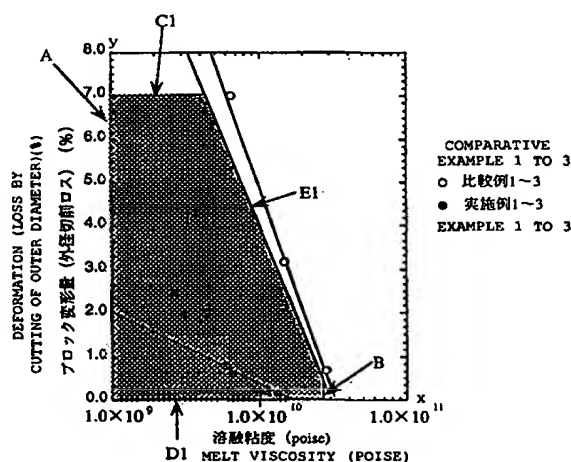




(51) 国際特許分類6 B29C 67/04	A1	(11) 国際公開番号 WO00/16968  (43) 国際公開日 2000年3月30日(30.03.00)
(21) 国際出願番号 PCT/JP99/04832 (22) 国際出願日 1999年9月7日(07.09.99) (30) 優先権データ 特願平10/264681 1998年9月18日(18.09.98) JP (71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) ダイキン工業株式会社 (DAIKIN INDUSTRIES, LTD.)(JP/JP) 〒530-8323 大阪府大阪市北区中崎西2丁目4番12号 梅田センタービル Osaka, (JP) (72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてののみ) 石割和夫(ISHIWARI, Kazuo)(JP/JP) 内田達郎(UCHIDA, Tatsuro)(JP/JP) 山田雅彦(YAMADA, Masahiko)(JP/JP) 〒566-8585 大阪府摂津市西一津屋1番1号 ダイキン工業株式会社 淀川製作所内 Osaka, (JP) (74) 代理人 青山 葆, 外(AOYAMA, Tamotsu et al.) 〒540-0001 大阪府大阪市中央区城見1丁目3番7号 IMPビル 青山特許事務所 Osaka, (JP)		(81) 指定国 CN, KR, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE) 添付公開書類 国際調査報告書

(54) Title: POLYTETRAFLUOROETHYLENE MOLDED PRODUCT IN BLOCK FORM AND METHOD FOR PRODUCTION THEREOF

(54) 発明の名称 ポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品およびその製造方法



#### (57) Abstract

A polytetrafluoroethylene molded product formed by calcination molding, which is resistant to deformation. The molded product is produced by molding a polytetrafluoroethylene powder using compression molding to form a pre-molded product and then calcinating the pre-molded product while rotating it. This polytetrafluoroethylene molded product can be used for reducing the loss of material during the course of cutting from a molded product in a block form to a film or sheet.

(57)要約

ブロック状成形品から安定的なフィルムまたはシートが切削できるまでの材料ロスを減少させるために、ブロック変形量の少ないブロック状焼成成形品を得る。ポリテトラフルオロエチレン粉末を圧縮成形して予備成形品を形成した後、得られた予備成形品を回転させながら焼成することによってポリテトラフルオロエチレン成形品を製造する。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE アラブ首長国連邦	DM ドミニカ	KZ カザフスタン	RU ロシア
AL アルバニア	EE エストニア	LC セントルシア	SD スーダン
AM アルメニア	ES スペイン	LI セリヒテンシュタイン	SE スウェーデン
AT オーストリア	FI フィンランド	LK スリ・ランカ	SG シンガポール
AU オーストラリア	FR フランス	LR リベリア	SI スロヴェニア
AZ アゼルバイジャン	GA ガボン	LS リトアニア	SK スロヴァキア
BA ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB 英国	LT リトアニア	SL シエラ・レオネ
BB バルバドス	GE グルジア	LU ルクセンブルグ	SN セネガル
BE ベルギー	GR ギリシャ	LV ラトヴィア	SZ スワジランド
BF ブルキナ・ファソ	GH ガーナ	MA モロッコ	TD チャード
BG ブルガリア	GM ガンビア	MC モナコ	TG トーゴ
BJ ベナン	GN キニア	MD モルドヴァ	TJ タジキスタン
BR ブラジル	GW キニア・ビサオ	MG マダガスカル	TZ タンザニア
BY ベラルーシ	GR ギリシャ	MK マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TM トルクメニスタン
CA カナダ	HR クロアチア		TR トルコ
CF 中央アフリカ	HU ハンガリー	ML マリ	TT トリニダード・トバゴ
CG コンゴ	ID インドネシア	MN モンゴル	UA ウクライナ
CH スイス	IE アイルランド	MR モーリタニア	UG ウガンダ
CI コートジボアール	IL イスラエル	MW マラウイ	US 米国
CM カメルーン	IN インド	MX メキシコ	UZ ウズベキスタン
CN 中国	IS アイスランド	NE ニジェール	VN ヴェトナム
CR コスタ・リカ	IT イタリア	NL オランダ	YU ユーゴスラビア
CU キューバ	JP 日本	NO ノールウエー	ZA 南アフリカ共和国
CY キプロス	KE ケニア	NZ ニュー・ジーランド	ZW ジンバブエ
CZ チェッコ	KG キルギスタン	PL ポーランド	
DE ドイツ	KP 北朝鮮	PT ポルトガル	
DK デンマーク	KR 韓国	RO ルーマニア	

## 明 細 書

## ポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品およびその製造方法

## 5 技術分野

本発明は、ポリテトラフルオロエチレン（以下、「PTFE」とも言う）からなる成形品およびその製造方法に関する。本発明によれば、歪みが少ない大型ブロック状PTFE成形品が得られる。

## 関連技術

- 10 PTFEは溶融粘度が380℃で約 $10^8$ ポアズ以上と極めて高く、一般の熱可塑性樹脂（成形時の溶融粘度 $10^3 \sim 10^4$ ポアズ）で用いられている押出、射出などの成形方法が適用できない。

このため、PTFEの成形方法としては、次のような圧縮成形が最も一般的であり、ブロック状成形品がこの方法で成形される。

- 15 (a) 金型中に原料粉末を均一に充填し、常温でプレスにはさんで100～1000 kg/cm<sup>2</sup>で圧縮する。

(b) 得られた比較的もろい円柱状の予備成形品の回転対象軸が重力方向になるように予備成形品を炉に入れ焼成温度360～380℃まで上昇させ、予備成形品を動かさない状態で、その温度で予備成形品の焼結が完了するまで保持する  
20 (縦焼成方法)。

- (c) そのまま炉の温度を室温まで降ろしてブロック状成形品を得る。

このようにして得られたブロックを切削し、厚み25  $\mu$ 程度のフィルムを得る。得られたPTFEフィルムは、耐熱電線、車両モータ・発電機などの耐熱絶縁テープ等に用いられる。

- 25 しかし、ブロック状成形品をシートやフィルムなどに加工する場合に、焼成時に生じるブロック状成形品の変形量（ただし、高さの変形は除く）が大きいと、切削時の材料ロスが大きくなる。この材料ロスは、溶融粘度が低く、ブロック状成形品の高さが高いものについて顕著である。

発明の要旨

本発明の目的は、歪みが少ないブロック状成形品を製造することにある。

本発明は、ポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品の380℃での熔融粘度（ポイズ）の常用対数をx軸とし、成形品のブロック変形量（%）をy軸とするグラフにおいて、直線A： $x = 1.0 \times 10^9$ （熔融粘度が $1.0 \times 10^9$ ポイズ）、直線B： $x = 2.5 \times 10^{10}$ （熔融粘度が $2.5 \times 10^{10}$ ポイズ）、直線C1： $y = 7.0$ （ブロック変形量が7.0%）、直線D1： $y = 0$ （ブロック変形量が0%）および直線E1： $y = -8.7 \log_{10}(x) + 91$ によって囲まれる多角形の領域に含まれる熔融粘度およびブロック変形量を有するポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品を提供する。

さらに、本発明は、ポリテトラフルオロエチレン予備成形品の対称軸が水平になる状態で予備成形品をパイプ内に挿入し、水平方向に離れている2つのロール上に該パイプを配置して、少なくとも1つのロールを回転させて、ロールの回転をパイプに伝えてパイプおよび予備成形品を回転させながら、予備成形品を加熱することによって、予備成形品を焼成して、ポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品を得るポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品の製造方法を提供する。

#### 図面の簡単な説明

図1は、本発明で使用する予備成形品を示す斜視図である。

図2は、予備成形品を回転させる態様を示す斜視図である。

図3は、変形度、真円度、曲りの測定方法を示す図である。

図4は、本発明のポリテトラフルオロエチレン成形品が該当するブロック変形量（%）と380℃での熔融粘度（ポイズ）を示すグラフである。

図5は、ブロック変形量（%）と380℃での熔融粘度（ポイズ）の本発明の好ましい領域を与える直線を示すグラフである。

#### 発明の詳細な説明

ポリテトラフルオロエチレン粉末は、懸濁重合によって得られた粉末であることが好ましいが、他の重合方法（例えば、乳化重合）によって得られた粉末であってもよい。ポリテトラフルオロエチレン粉末の平均粒径は、10～1000μmであってよい。

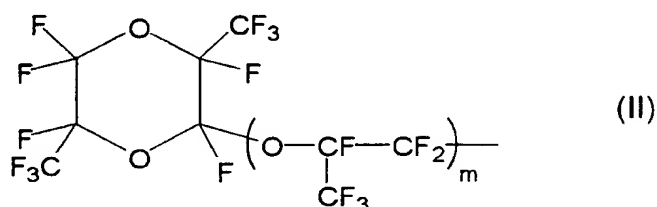
ポリテトラフルオロエチレン粉末は、テトラフルオロエチレンのホモポリマーまたはテトラフルオロエチレンと他のフルオロモノマーとのコポリマーである。コポリマーにおいて、テトラフルオロエチレンとフルオロモノマーとのモル比は、95 : 5 ~ 99.999 : 0.001であってよい。コポリマーは、テトラフルオロエチレンとパーフルオロビニルエーテルからなるコポリマー（すなわち、ビニルエーテル変性ポリテトラフルオロエチレン）であってよい。パーフルオロビニルエーテルは、式：



[ $\text{R}_f$ は、炭素原子およびフッ素原子を必須としており、水素原子を有しておらず、酸素原子を有していてもよい有機基である。]

で示される化合物であってよい。

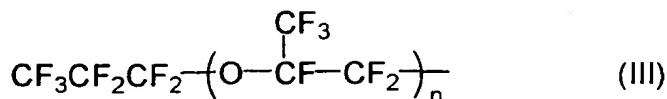
パーフルオロビニルエーテル (I) における  $\text{R}_f$  基は、炭素数 1 ~ 10 のパーフロオロアルキル基、炭素数 4 ~ 9 のパーフロオロ(アルコシアルキル)基、式 (II)：



[式中、 $m$ は0 ~ 4の数である。]

または

式 (III)：



[式中、 $n$ は1 ~ 4の数である。]

で示される基であってよい。

ポリテトラフルオロエチレンの380℃での熔融粘度は $2.5 \times 10^{10}$ ポイズ以下、例えば $2.0 \times 10^{10}$ ポイズ以下である。

ポリテトラフルオロエチレン粉末を圧縮成形することによって予備成形品を得

る。圧縮成形において、圧縮圧力は、一般的に  $100 \sim 1000 \text{ kg/cm}^2$  であつてよい。圧縮を保持する時間は、一般的に、1分～5時間であつてよい。

得られた予備成形品の形状は、特に限定されないが、円柱状であつてよい。円柱状の予備成形品は、円柱の対称軸（回転対称軸）において、回転用シャフトを通すための穴を有してよい。円柱状予備成形品において、外径（すなわち、円柱の回転対称軸の軸に垂直な底面の外径）は  $10 \sim 100 \text{ cm}$ 、円柱の高さ（すなわち、円柱の回転対称軸軸方向の長さ）は  $50 \sim 300 \text{ cm}$ 、特に  $80 \text{ cm}$  以上であつてよい。

本発明において、「成形品の高さ」および「ブロックの高さ」とは、円柱状予備成形品または円柱状焼成ブロック状成形品の回転対称軸の軸方向の長さを意味する。

得られた予備成形品を回転させながら、焼成することによってブロック状の成形品を得る。

一般的には、円柱の対称軸が水平方向になるように円柱を倒置した状態で、円柱の対称軸を中心にして、回転を連続的に行うことが好ましい。あるいは、円柱の対称軸が鉛直方向になるように円柱を配置した状態から、対称軸に垂直方向に円柱を回転させ、円柱を倒置する状態にし、次いで、さらに円柱を元の配置状態にするように回転を行つてもよい。この対称軸に垂直方向に回転を行う場合において、回転は、連続的であつても、または断続的（例えば、円柱の対称軸が鉛直方向になる位置で円柱を一定時間（例えば、 $1 \sim 60$  分）静置させる。）であつてもよい。回転速度は、通常  $1 \sim 300$  回転/時であつてよい。

予備成形品を焼成する際に予備成形品にかかる単位面積当たりの荷重は、 $100 \text{ g/cm}^2$  以下、例えば  $50 \text{ g/cm}^2$  以下、特に  $30 \text{ g/cm}^2$  以下であることが好ましい。ここで、単位面積当たりの荷重とは、予備成形品を焼成する際に該予備成形品にかかる単位面積当たりの荷重のことをいい、従来の焼成方法（縦焼成方法）では（予備成形品の重量（ $\text{g}$ ）） $\div$ （予備成形品の底面積（ $\text{cm}^2$ ））で定義される。また、本発明の焼成方法（回転焼成方法）では、単位面積当たりの荷重とは、（予備成形品の重量（ $\text{g}$ ）） $\div$ （2つの底面積を除いた予備成形品の外部に面する表面積（ $\text{cm}^2$ ））で定義される。

予備成形品からポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品を製造するとき、特に、図2の方法で焼成した場合に、ブロック高さ（すなわち、図1におけるL）が増大することがある。ブロック高さの増大は、3%以上、例えば6%以上、特に8%以上であってよい。

5 焼成において、予備成形品を、予備成形品の融点よりも10～100℃高い温度、例えば、15～50℃高い温度に加熱する。加熱時間は、通常、1～500時間である。焼成において予備成形品を回転させる必要があり、予備成形品は融点以下でも加熱すると変形が始まるので、予備成形品の表面の温度が予備成形品の融点よりも100℃低い温度に達する前に、回転を開始することが好ましい。

10 回転の停止は、予備成形品を冷却して結晶化が完了した後に行うことが好ましい。

予備成形品の穴には、シャフトを通してよい。シャフトは、SUSまたはNiメッキされた金属（例えば、鉄）からできていてよく、中空または非中空であってよい。

15 焼成を行うことによって、ポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品が得られる。焼成後のポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品の形状は、予備成形品とほぼ同じである。成形品は予備成形時の圧縮方向には膨張し、圧縮方向と垂直な方向（径方向）には収縮する。

20 本発明は、安定的なフィルムまたはシートが切削できるまでの重量ロス（すなわち、ブロック高さに等しい幅のシートを得るまでに要するブロックの切削重量）（すなわち、ブロック変形量）：

$$(\text{成形品全体の重量} - \text{最小外径での重量}) \div \text{成形品全体の重量} \times 100$$
が7.0%以下のポリテトラフルオロエチレン成形品を提供する。

25 本発明の成形品は変形が少ない。変形とは、図3に示す様に径の変化がある成形品、真円性が悪い成形品、または曲りがある成形品を言う。ポリテトラフルオロエチレン成形品において、真円度が5.0%以下、例えば3.0%以下、特に0.3%以下、変形度が15%以下、例えば5%以下、特に1.0%以下、曲り（成形品高さに対し）が2.0%以下、例えば1.0%以下、特に0.1%以下であることが好ましい。

$$\text{真円度} = (\text{最大外径 (D)} - \text{最小外径 (C)}) \div \text{最小外径} \times 100$$

変形度＝(最大外径(B)－最小外径(A))÷最小外径×100

曲がり＝(成形品底面の中心位置と成形品上面の中心位置の差(E))÷成形品高さ×100。

5 得られた焼成成形品をスカイブ加工することによって、ポリテトラフルオロエチレンのフィルム(厚さ:例えば、5 $\mu$ m～1cm、特に5 $\mu$ m～1mm)を得ることができる。

10 本発明のポリテトラフルオロエチレン成形品から切削して得られるフィルムまたはシートは、歪み(特に、カール)が少ない。切削したフィルムやシートを、長さ方向(図1におけるDの方向)(シートの長さ方向)に600mmにカットし、高さ方向(図1におけるLの方向)(シートの幅方向)に幅50mmづつにカットしたフィルムまたはシートの長さが成形品のどの位置をとっても(即ち、カットした全てのフィルムまたシートどうしで比較して)600mmの長さに対し±5mm以下であることが好ましい。

15 焼成した成形品から切削したフィルムまたはシートを加熱処理しても、歪みが少ない(即ち均一な膨張、収縮をする)。切削したフィルムまたはシートを長さ方向、高さ方向とも200mmの正方形にカットし、360℃で2時間加熱処理後、毎時25℃にて冷却した時のフィルムまたはシートの歪みは、成形品のどの位置でも(即ち、カットした全てのフィルムまたはシートどうしで比較して)、長さ方向(成形品の回転対称軸に対して垂直方向)、高さ方向(成形品の回転対称軸に対して平行方向)とも最大長と最小長の差が5mm以下であることが好ましい。

20 得られたポリテトラフルオロエチレンフィルムまたはシートは、耐熱電線、車両モータ・発電機などの耐熱絶縁テープ、化学プラントの耐蝕ライニング、配管ガスケット等に用いられる。

以下、添付図面を参照して、本発明を具体的に説明する。

25 図1は、本発明の予備成形品を示す斜視図である。予備成形品10は、円柱状であり、穴12を有している。穴12は、円柱の対称軸に一致している。予備成形品10は、対称軸が水平方向になるように配置されている。予備成形品10は、図示するように直径(平均直径)Dおよび長さ(平均長さ)Lを有する。通常、直径Dは20～150cm、例えば30～70cmであり、長さLは30～300cm、



例えば60～150cmである。穴の直径は、Dよりも例えば5～100cm小さい。予備成形品10は、焼成後の成形品とほぼ同様の形状および大きさを有する。予備成形品10は、穴12の中央を通過する対称軸（中心軸または回転対称軸）14を有する。予備成形品10を対称軸14のまわりに回転させる。

- 5 図2は、予備成形品を回転させる態様を示す断面図である。予備成形品10の外側には、金属パイプ34（例えば、SUSパイプ）が存在する。2つのロール30、32を矢印方向に回転させる。ロール30および32の回転がパイプ34に伝わり、予備成形品10が回転する。予備成形品10の穴には、固定されていない中空のパイプ36（特に金属パイプ）が通されており、予備成形品10の回転がパイプ36に伝えられ、パイプ36も回転する。パイプ36は無くてもよい。この態様によれば、予備成形品10と金属パイプ34とがより広い面積で接触するという利点を得られる。

図3は、成形品における変形度、真円度、曲り（成形品高さに対し）の測定方法を示す図である。

- 15 図3（a）および（b）は、変形度の測定方法を示すポリテトラフルオロエチレン成形品の正面図である。変形度は、次の式から求められる。

$$\text{変形度} = (\text{最大外径 (B)} - \text{最小外径 (A)}) \div \text{最小外径 (A)} \times 100$$

変形度は15%以下であることが好ましい。

- 20 図3（c）は、真円度の測定方法を示すポリテトラフルオロエチレン成形品の上面図である。真円度は、次の式から求められる（ただし、真円度の測定は、成形品の同心円上での最大外径（D）と最小外径（C）との差が最も大きくなる点で測定した。）。

$$\text{真円度} = (\text{最大外径 (D)} - \text{最小外径 (C)}) \div \text{最小外径} \times 100$$

真円度は5.0%以下であることが好ましい。

- 25 図3（d）は、成形品高さにおける曲りの測定方法を示すポリテトラフルオロエチレン成形品の穴の貫通方向に平行な断面図である。曲りは、次の式から求められる。

曲り = (成形品底面の中心位置と成形品上面の中心位置の差 (E)) ÷ 成形品高さ × 100。

曲り(成形品高さに対し)が2.0%以下であることが好ましい。

図4は、本発明のポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品が有するブロック変形量(%)と380℃での熔融粘度(ポイズ)を示すグラフである。本発明の範囲は、直線A： $x = 1.0 \times 10^9$  (熔融粘度が $1.0 \times 10^9$ ポイズ)、  
5 直線B： $x = 2.5 \times 10^{10}$  (熔融粘度が $2.5 \times 10^{10}$ ポイズ)、直線C  
1： $y = 7.0$  (ブロック変形量が7.0%)、直線D1： $y = 0$  (ブロック変形量が0%) および直線E1： $y = -8.7 \log_{10}(x) + 91$ によって囲まれる領域である。直線E1は、従来技術(すなわち、比較例1～3)に比較して、ブロック変形量が約20%減少されている状態を示す直線である。図4には、  
10 実施例1～3および比較例1～3で得られたデーターをも示す。

図5は、ブロック変形量と380℃での熔融粘度の本発明の好ましい領域を与える直線を示すグラフである。C2は $y = 6.0$ である直線であり、C3は $y = 5.0$ である直線である。E2は $y = -7.6 \log_{10}(x) + 79$ である直線であり、E3は、 $y = -6.5 \log_{10}(x) + 68$ である直線である。直  
15 線E2は、比較例1～3に比較して、ブロック変形量が約30%減少している状態を示す直線である。直線E3は、比較例1～3に比較して、ブロック変形量が約40%減少している状態を示す直線である。直線D2は、 $y = 0.7$  (ブロック変形量が0.7%)である直線である。本発明において、変形量が0.7%を超えていてもよい。

20 本発明の焼成ブロック状成形品は、直線Aと直線Bと直線C1と直線D1と直線E1によって囲まれる領域のブロック変形量および熔融粘度を有する。直線Aと直線Bと直線C2と直線D1と直線E2によって囲まれる領域が好ましい。直線Aと直線Bと直線C3と直線D1と直線E3によって囲まれる領域がさらに好ましい。

25 発明の好ましい態様

以下、実施例および比較例を示し、本発明を例示する。

テトラフルオロエチレン重合体の熔融粘度は、レオメトリクス社製粘弾性測定機RDS-2を使用して、380℃で測定した。

実施例1

懸濁重合によって得たテトラフルオロエチレン／パーフルオロプロピルビニル  
エーテル共重合体（共重合体の380℃における溶融粘度： $6.00 \times 10^9$ ポ  
イズ）の粉末（平均粒径：約30  $\mu\text{m}$ ）を、25℃において圧力200  $\text{kg}/\text{cm}^2$   
で120分間圧縮成形して、図1に示すような予備成形品を得た。予備成形品の  
5 長さLは約100 cm、直径Dは約42 cmであった。穴の直径は、約15 cmであっ  
た。予備成形品の焼成時における単位面積当たりの荷重〔（予備成形品の重量  
（250 kg）） $\div$ （2つの底面積を除いた予備成形品の外表面積（すなわち、  
焼成時にパイプに接する予備成形品の表面の面積）（13190  $\text{cm}^2$ ）〕は、  
19  $\text{g}/\text{cm}^2$ であった。

10 図2に示すようにして予備成形品を焼成した。2つのロールの断面の外直径は  
15 cm、成形品の外側のステンレスパイプに関して、外直径は50 cmであり、  
肉厚は1 cmであった。成形品の内部のステンレスパイプに関して、外直径は1  
2 cmであり、肉厚は1 cmであった。ロールの回転速度は、予備成形品の回転  
速度を90回転／時で回転させるように調整した。90回転／時で回転予備成形  
15 品を340～380℃の温度で50時間保って、焼成を行った。焼成によりブロ  
ック状成形品を得た。ブロック状成形品の長さは約108 cmであり、直径は約4  
0 cmであり、穴の直径は約14 cmであった。

ブロック状成形品から安定的なフィルムまたはシートが切削できるまでの重量  
ロス（ブロック変形量）は0.8%であった。

20 ブロック状成形品をスカイブ加工することによって、厚さ25  $\mu\text{m}$ のフィルム  
を得た。このフィルムは、歪みがなく、カールまたはしわが生じることはなかつ  
た。

## 実施例2

380℃での溶融粘度が $6.55 \times 10^9$ ポイズであるテトラフルオロエチレ  
ン系ポリマーを用いる以外は実施例1と同様の手順を繰り返した。

25 ブロック状成形品から安定的なフィルムまたはシートが切削できるまでの重量  
ロス（ブロック変形量）は0.6%であった。

ブロック状成形品をスカイブ加工することによって、厚さ25  $\mu\text{m}$ のフィルム  
を得た。このフィルムは、歪みがなく、カールまたはしわが生じることはなかつ

た。

### 実施例 3

380℃での熔融粘度が $1.32 \times 10^{10}$ ポイズであるテトラフルオロエチレン系ポリマーを用いる以外は実施例 1 と同様の手順を繰り返した。

5       ブロック状成形品から安定的なフィルムまたはシートが切削できるまでの重量ロス（ブロック変形量）は0.16%であった。

ブロック状成形品をスカイプ加工することによって、厚さ $25 \mu\text{m}$ のフィルムを得た。このフィルムは、歪みがなく、カールまたはしわが生じることはなかった。

### 10       比較例 1

380℃での熔融粘度が $6.55 \times 10^9$ ポイズであるテトラフルオロエチレン系ポリマーを用い、従来方法を用いて焼成（縦焼成）を行った以外は、実施例 1 と同様の手順を繰り返した。すなわち、予備成形品の回転対称軸が重力方向になるように、予備成形品を炉に入れ、予備成形品を動かさずに340～380℃  
15       で50時間加熱した。

予備成形品の焼成時における単位面積当たりの荷重（（予備成形品の重量（250kg））÷（予備成形品の底面積 $1210 \text{ cm}^2$ ））は、 $207 \text{ g/cm}^2$ であった。

20       ブロック状成形品から安定的なフィルムまたはシートが切削できるまでの重量ロス（ブロック変形量）は7.0%であった。

### 比較例 2

380℃での熔融粘度が $1.32 \times 10^{10}$ ポイズであるテトラフルオロエチレン系ポリマーを用い、従来方法を用いて焼成（縦焼成）を行った以外は、実施例 1 と同様の手順を繰り返した。すなわち、予備成形品の回転対称軸が重力方向  
25       になるように、予備成形品を炉に入れ、予備成形品を動かさずに340～380℃で50時間加熱した。

ブロック状成形品から安定的なフィルムまたはシートが切削できるまでの重量ロス（ブロック変形量）は3.2%であった。

### 比較例 3

380℃での熔融粘度が $2.50 \times 10^{10}$ ポイズであるテトラフルオロエチレン系ポリマーを用い、従来方法を用いて焼成（縦焼成）を行った以外は、実施例1と同様の手順を繰り返した。すなわち、予備成形品の回転対称軸が重力方向になるように、予備成形品を炉に入れ、予備成形品を動かさずに340～380℃で50時間加熱した。

ブロック状成形品から安定的なフィルムまたはシートが切削できるまでの重量ロス（ブロック変形量）は0.7%であった。

#### 発明の効果

本発明によれば、ブロック状成形品から安定的なフィルムまたはシートが切削できるまでの材料ロスが少ない。

## 請求の範囲

1. ポリテトラフルオロエチレンの380℃での熔融粘度（ポイズ）の常用対  
数をx軸とし、成形品のブロック変形量（%）をy軸とするグラフにおいて、直  
線A： $x = 1.0 \times 10^9$ （熔融粘度が $1.0 \times 10^9$ ポイズ）、直線B： $x = 2.5 \times 10^{10}$ （熔融粘度が $2.5 \times 10^{10}$ ポイズ）、直線C1： $y = 7.0$ （ブ  
ロック変形量が7.0%）、直線D1： $y = 0$ （ブロック変形量が0%）および  
直線E1： $y = -8.7 \log_{10}(x) + 91$ によって囲まれる多角形の領域  
に含まれる熔融粘度およびブロック変形量を有するポリテトラフルオロエチレン  
ブロック状成形品。

2. 成形品の380℃での熔融粘度が $2 \times 10^{10}$ ポイズ以下である請求項1  
に記載の成形品。

3. ブロック変形量が0.7%を越える請求項1に記載の成形品。

4. ポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品が円柱状であり、成形品の  
高さが800mm以上である請求項1に記載の成形品。

5. ポリテトラフルオロエチレン予備成形品の対称軸が水平になる状態で予備  
成形品をパイプ内に挿入し、水平方向に離れている2つのロール上に該パイプを  
配置して、少なくとも1つのロールを回転させて、ロールの回転をパイプに伝え  
てパイプおよび予備成形品を回転させながら、予備成形品を加熱することによっ  
て、予備成形品を焼成して、ポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品を得  
るポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品の製造方法。

6. 予備成形品の焼成時における単位面積当たり荷重が $100 \text{ g/cm}^2$ 以下  
である請求項5に記載の製造方法。

7. 予備成形品からポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品を製造する  
ときに生じるブロック状成形品の高さの膨脹が6%以上である請求項5に記載の  
製造方法。

1/4

Fig.1

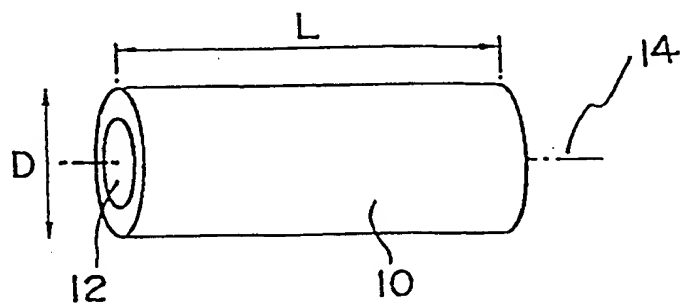
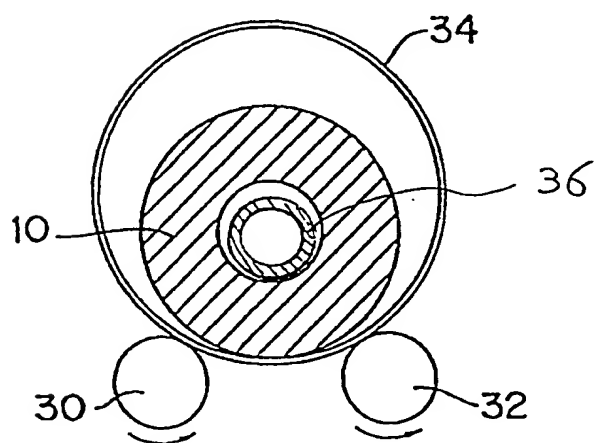


Fig.2

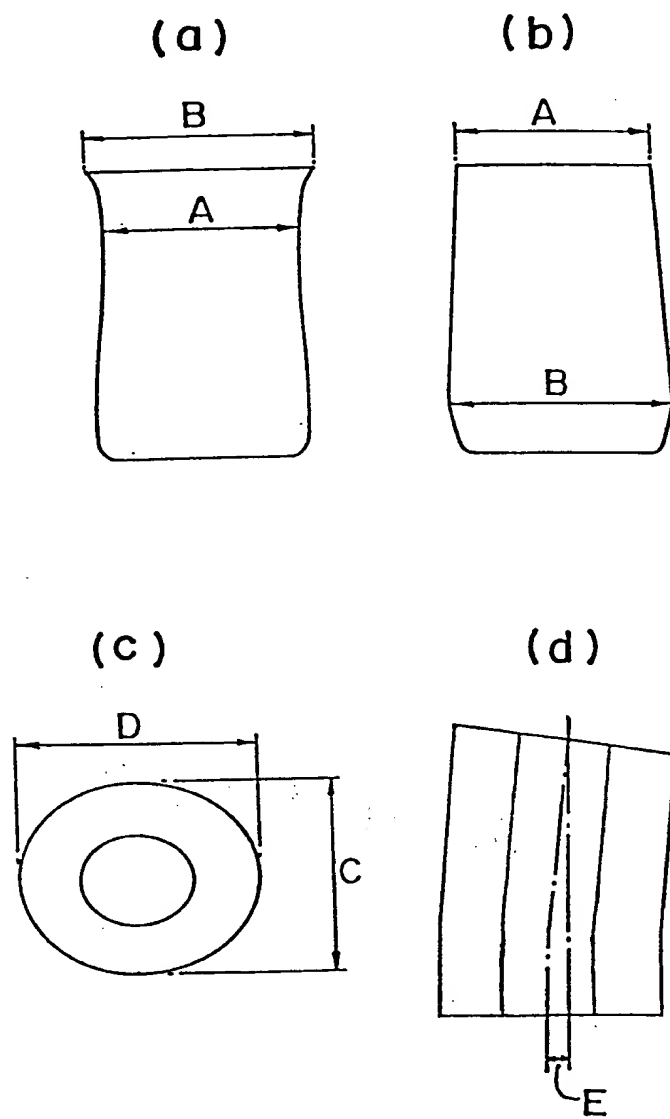


**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



2/4

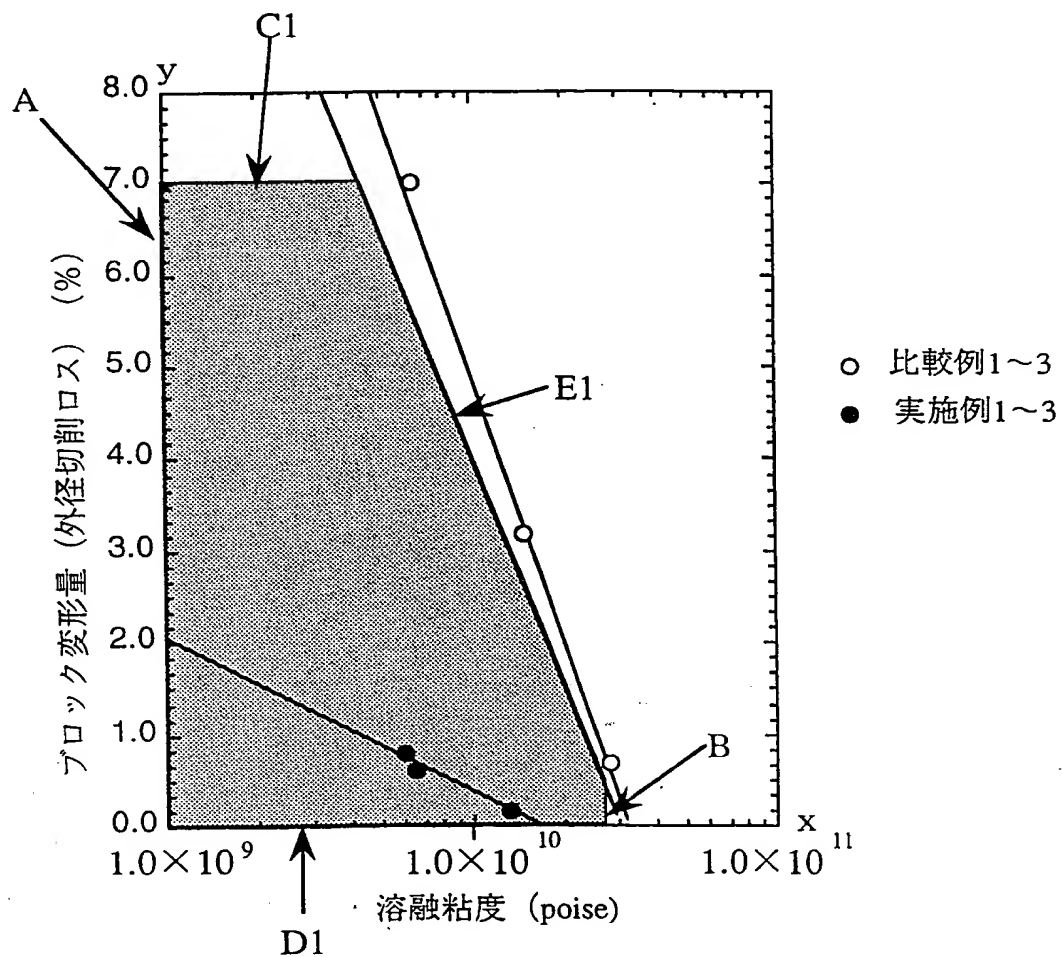
Fig.3



THIS PAGE BLANK (USPTO)

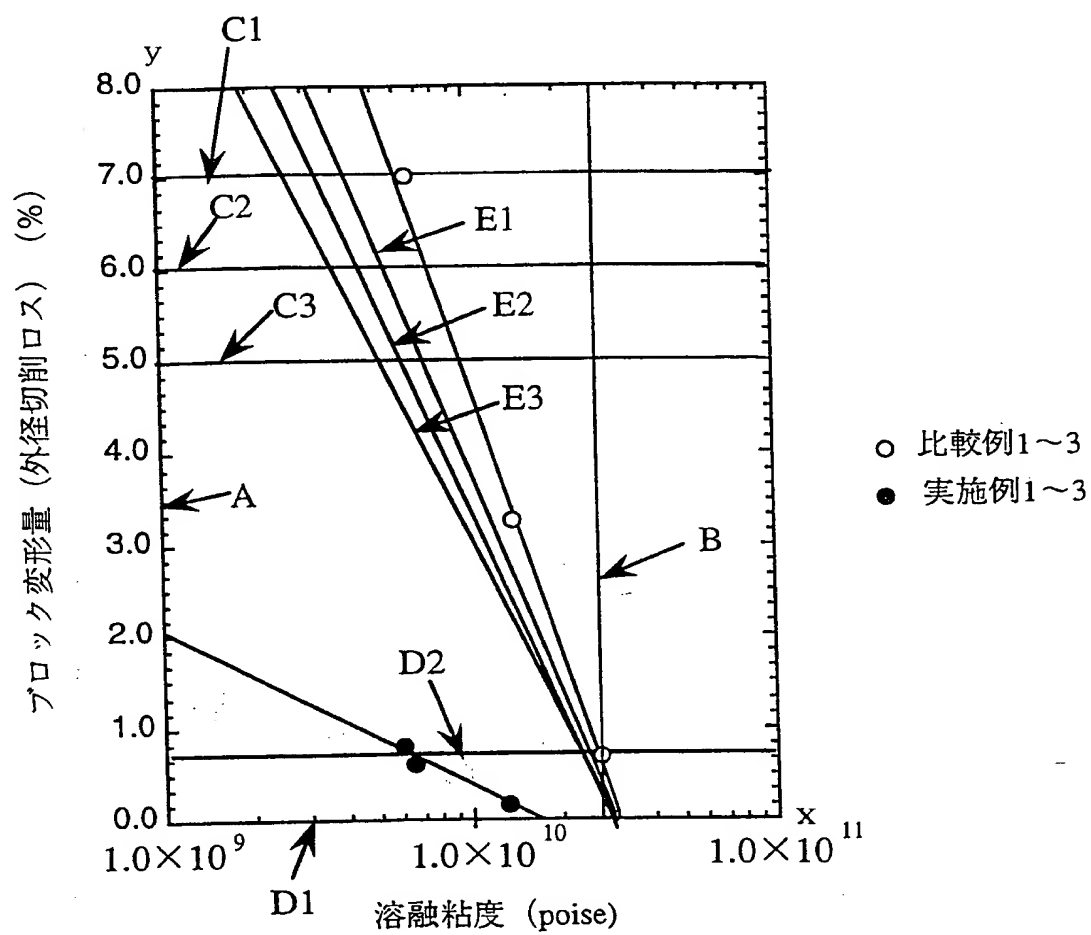
3/4

Fig. 4



THIS PAGE BLANK (ISPTO)

Fig.5



THIS PAGE BLANK (USP 10)

CLAIMS

1. A polytetrafluoroethylene block-shaped molded article having a melt viscosity and a block deformation amount contained within a polygonal region  
5 surrounded by a straight line A:  $x = 1.0 \times 10^9$  (melt viscosity of  $1.0 \times 10^9$  poise), a straight line B:  $x = 2.5 \times 10^{10}$  (melt viscosity of  $2.5 \times 10^{10}$  poise), a straight line C1:  $y = 7.0$  (block deformation amount of 7.0%), a straight line D1:  $y = 0$  (block deformation amount of 0%), and a straight line E1:  $y = -8.7 \log_{10}(x) + 91$  in a graph  
10 with an x-axis being a common logarithm of the melt viscosity (poise) at 380°C of polytetrafluoroethylene and a y-axis being the block deformation amount (%).
2. The molded article according to claim 1, wherein the melt viscosity at 380°C of the molded article is at most  $2 \times 10^{10}$  poise.
3. The molded article according to claim 1, wherein the block deformation amount is more than 0.7%.
- 15 4. The molded article according to claim 1, wherein the polytetrafluoroethylene block-shaped molded article is cylindrical and a height of the molded article is at least 800 mm.
5. A method of producing a polytetrafluoroethylene block-shaped molded article, comprising inserting a polytetrafluoroethylene preform, into a pipe in a state  
20 in which a symmetry axis of the preform is horizontal; placing the pipe on two rolls spaced apart in a horizontal direction; and heating the preform to bake the preform while rotating the pipe and the preform by rotating at least one roll to transmit a rotation of the roll to the pipe, whereby giving the polytetrafluoroethylene block-shaped molded article.
- 25 6. The method according to claim 5, wherein a load per unit area at the

THIS PAGE E: 1X (USPTO)



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/04832

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl.<sup>6</sup> B29C67/04

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
Int.Cl.<sup>6</sup> B29C67/04Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-1999  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-1999 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-1999

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 4-185426, A (NIPPON VALQUA INDUSTRIES, LTD.), 02 July, 1992 (02.07.92), Claims; page 5, upper right column, line 4 to lower right column, line 15; Fig. 3 (Family: none)	1-6
Y	JP, 6-262693, A (DAIKIN INDUSTRIES, LTD.), 20 September, 1994 (20.09.94), Claim 2 (Family: none)	1-6
A	JP, 3-197122, A (NIPPON VALQUA INDUSTRIES, LTD.), 28 August, 1991 (28.08.91) (Family: none)	1-6

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search

Date of mailing of the international search report  
07 December, 1999 (07.12.99)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

EP

US

PCT 国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)  
[PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 661406	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP99/04832	国際出願日 (日.月.年) 07.09.99	優先日 (日.月.年) 18.09.98
出願人(氏名又は名称) ダイキン工業株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 2 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

#### 1. 国際調査報告の基礎

- a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。  
☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。
- b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。  
☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。  
☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。  
☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、  
 第 4 図とする。 ☒ 出願人が示したとおりである。 ☐ なし  
☐ 出願人は図を示さなかった。  
☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.<sup>6</sup> B29C67/04

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.<sup>6</sup> B29C67/04

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-1999年  
 日本国実用新案登録公報 1996-1999年  
 日本国登録実用新案公報 1994-1999年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP, 4-185426, A (日本バルカー工業株式会社), 2. 7月. 1992 (02. 07. 92), 特許請求の範囲、第5頁右上欄第4行-右下欄第15行、第3図 (ファミリーなし)	1-7
Y	JP, 6-262693, A (ダイキン工業株式会社), 20. 9月. 1994 (20. 09. 94), 請求項2 (ファミリーなし)	1-7
A	JP, 3-197122, A (日本バルカー工業株式会社), 28. 8月. 1991 (28. 08. 91), (ファミリーなし)	1-7

☐ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

30. 11. 99

国際調査報告の発送日

07.12.99

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
 郵便番号100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

加藤 志麻子

印

4 F

8823

電話番号 03-3581-1101 内線 3430

THIS PAGE BLANK (000000)

## PATENT COOPERATION TREATY

**PCT**  
**NOTIFICATION OF TRANSMITTAL**  
**OF COPIES OF TRANSLATION**  
**OF THE INTERNATIONAL PRELIMINARY**  
**EXAMINATION REPORT**

(PCT Rule 72.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

AOYAMA, Tamotsu  
 Aoyama & Partners  
 IMP Building, 3-7, Shiromi 1-  
 chome, Chuo-ku  
 Osaka-shi, Osaka 540-0001  
 JAPON

Date of mailing (day/month/year)  
 25 May 2001 (25.05.01)

Applicant's or agent's file reference  
 661406

International application No.  
 PCT/JP99/04832

International filing date (day/month/year)  
 07 September 1999 (07.09.99)

Applicant  
 DAIKIN INDUSTRIES, LTD. et al

**IMPORTANT NOTIFICATION****1. Transmittal of the translation to the applicant.**

The International Bureau transmits herewith a copy of the English translation made by the International Bureau of the international preliminary examination report established by the International Preliminary Examining Authority.

**2. Transmittal of the copy of the translation to the elected Offices.**

The International Bureau notifies the applicant that copies of that translation have been transmitted to the following elected Offices requiring such translation:

EP,CN,US

The following elected Offices, having waived the requirement for such a transmittal at this time, will receive copies of that translation from the International Bureau only upon their request:

KR

**3. Reminder regarding translation into (one of) the official language(s) of the elected Office(s).**

The applicant is reminded that, where a translation of the international application must be furnished to an elected Office, that translation must contain a translation of any annexes to the international preliminary examination report.

It is the applicant's responsibility to prepare and furnish such translation directly to each elected Office concerned (Rule 74.1). See Volume II of the PCT Applicant's Guide for further details.

The International Bureau of WIPO  
 34, chemin des Colombettes  
 1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Elliott Peretti

Telephone No. (41-22) 338.83.38

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



4.T  
Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference 661406	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP99/04832	International filing date (day/month/year) 07 September 1999 (07.09.99)	Priority date (day/month/year) 18 September 1998 (18.09.98)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC B29C 67/04		
Applicant DAIKIN INDUSTRIES, LTD.		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.

2. This REPORT consists of a total of 3 sheets, including this cover sheet.

☒ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of 1 sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 12 April 2000 (12.04.00)	Date of completion of this report 15 December 2000 (15.12.2000)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

RECEIVED  
JUL - 3 2001  
TC 1700 MAIL ROOM

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP99/04832

## I. Basis of the report

### 1. With regard to the elements of the international application:\*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:  
 pages 1-11, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☒ the claims:  
 pages 2-4,6,7, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages 1,5, filed with the letter of 08 September 2000 (08.09.2000)
- ☒ the drawings:  
 pages 1-5, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.  
 These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:
- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

### 3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

### 4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

### 5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP99/04832

**V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability;  
citations and explanations supporting such statement****1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1-7	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-7	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-7	YES
	Claims		NO

**2. Citations and explanations****Claims 1-7**

The polytetrafluoroethylene block-shaped molded product that is obtained by compression molding a polytetrafluoroethylene powder obtained through suspension polymerization and then calcinating, where film or sheet cutting is possible for said molded product and a prescribed relationship between the melt viscosity and the amount of block deformation is satisfied with said molded product, and the method for manufacturing a polytetrafluoroethylene block-shaped molded product whereby a polytetrafluoroethylene powder is compression molded and then calcinated in a pipe while rotating, are not disclosed in any of documents 1-3 cited in the ISR, nor is it considered that it would be easy for a person skilled in the art to conceive of these things based on documents 1-3.

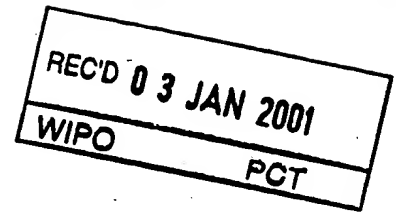
The subject matter of claims 1-7 is thus considered to be novel and to involve an inventive step.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PCT

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)  
〔PCT36条及びPCT規則70〕



出願人又は代理人 の書類記号 661406	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知（様式PCT/ IPEA/416）を参照すること。	
国際出願番号 PCT/J P99/04832	国際出願日 (日.月.年) 07.09.99	優先日 (日.月.年) 18.09.98
国際特許分類 (IPC) Int.Cl <sup>6</sup> B29C67/04		
出願人 (氏名又は名称) ダイキン工業株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条 (PCT36条) の規定に従い送付する。	
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で <u>3</u> ページからなる。  <input checked="" type="checkbox"/> この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。 (PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照) この附属書類は、全部で <u>1</u> ページである。	
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。  I <input checked="" type="checkbox"/> 国際予備審査報告の基礎 II <input type="checkbox"/> 優先権 III <input type="checkbox"/> 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成 IV <input type="checkbox"/> 発明の単一性の欠如 V <input checked="" type="checkbox"/> PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明 VI <input type="checkbox"/> ある種の引用文献 VII <input type="checkbox"/> 国際出願の不備 VIII <input type="checkbox"/> 国際出願に対する意見	

国際予備審査の請求書を受理した日 12.04.00	国際予備審査報告を作成した日 15.12.00	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員)  加藤 志麻子 電話番号 03-3581-1101 内線 3430	4 F 8823

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



## I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に  
応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告 には添付しない。  
PCT規則70.16, 70.17)

☐ 出願時の国際出願書類

- ☒ 明細書 第 1-11 ページ、 出願時に提出されたもの  
明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

- ☒ 請求の範囲 第 2-4, 6, 7 項、 出願時に提出されたもの  
請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの  
請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
請求の範囲 第 1, 5 項、 08. 09. 00 付の書簡と共に提出されたもの

- ☒ 図面 第 1-5 ページ/図、 出願時に提出されたもの  
図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

- ☐ 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならず、本報告に添付する。)

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

## 1. 見解

新規性(N)

請求の範囲

1-7

有

請求の範囲

無

進歩性(IS)

請求の範囲

1-7

有

請求の範囲

無

産業上の利用可能性(IA)

請求の範囲

1-7

有

請求の範囲

無

## 2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

## 請求の範囲1-7

国際調査報告で引用した文献1-3には、懸濁重合により得られたポリテトラフルオロエチレン粉末を圧縮成形した後これを焼成して得られる成形品であって、フィルムまたはシート切削が可能であり、かつ、熔融粘度とブロック変形量とが所定の関係を満たすポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品、及び、ポリテトラフルオロエチレン粉末を圧縮成形した後これをパイプ中で回転焼成するポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品の製造方法が記載されておらず、しかもこれらの点は、同文献1-3から当業者といえども容易に想到し得ないものである。

したがって、請求の範囲1-7に記載された発明は、新規性、進歩性を有する。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## 請 求 の 範 囲

1. (補正後) ポリテトラフルオロエチレンの380℃での熔融粘度(ポイズ)の常用対数をx軸とし、成形品から安定的なフィルムまたはシートが切削できるまでの重量ロスであるブロック変形量(%)をy軸とするグラフにおいて、  
5 直線A:  $x = 1.0 \times 10^9$  (熔融粘度が  $1.0 \times 10^9$  ポイズ)、直線B:  $x = 2.5 \times 10^{10}$  (熔融粘度が  $2.5 \times 10^{10}$  ポイズ)、直線C1:  $y = 7.0$  (ブロック変形量が7.0%)、直線D1:  $y = 0$  (ブロック変形量が0%) および直線E1:  $y = -8.7 \log_{10}(x) + 91$  によって囲まれる多角形の  
10 領域に含まれる熔融粘度およびブロック変形量を有するポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品であって、

ポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品が、懸濁重合により得られたポリテトラフルオロエチレン粉末を圧縮成形し、焼成して得られたものであるポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品。

15 2. 成形品の380℃での熔融粘度が  $2 \times 10^{10}$  ポイズ以下である請求項1に記載の成形品。

3. ブロック変形量が0.7%を越える請求項1に記載の成形品。

4. ポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品が円柱状であり、成形品の高さが800mm以上である請求項1に記載の成形品。

20 5. (補正後) ポリテトラフルオロエチレン粉末を圧縮成形して得られたポリテトラフルオロエチレン予備成形品の対称軸が水平になる状態で予備成形品をパイプ内に挿入し、水平方向に離れている2つのロール上に該パイプを配置して、少なくとも1つのロールを回転させて、ロールの回転をパイプに伝えてパイプおよび予備成形品を回転させながら、予備成形品を加熱することによって、予備成形品を焼成して、ポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品を得るポリテ  
25 ラフルオロエチレンブロック状成形品の製造方法。

6. 予備成形品の焼成時における単位面積当たり荷重が  $100 \text{ g/cm}^2$  以下である請求項5に記載の製造方法。

30 7. 予備成形品からポリテトラフルオロエチレンブロック状成形品を製造するときに生じるブロック状成形品の高さの膨脹が6%以上である請求項5に記載の製造方法。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



P.B.5818 - Patentlaan 2  
2280 HV Rijswijk (ZH)  
☎ +31 70 340 2040  
TX 31651 epo nl  
FAX +31 70 340 3016

**Eur päisches  
Patentamt**

Zweigstelle  
in Den Haag  
Recherchen-  
abteilung

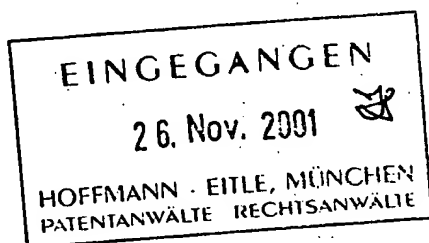
**European  
Patent Office**

Branch at  
The Hague  
Search  
division

**Office européen  
des brevets**

Département à  
La Haye  
Division de la  
recherche

HOFFMANN - EITLE  
Patent- und Rechtsanwälte  
Arabellastrasse 4  
81925 München  
ALLEMAGNE



Datum/Date

23.11.01

Zeichen/Ref./Réf.

87 033 a/fi

Anmeldung Nr./Application No./Demande n°/Patent Nr./Patent No./Brevet n°.

99940687.9-2307-JP9904832

Anmelder/Applicant/Demandeur/Patentinhaber/Proprietor/Titulaire

Daikin Industries, Ltd.

## COMMUNICATION

The European Patent Office herewith transmits as an enclosure the European search report for the above-mentioned European patent application.

If applicable, copies of the documents cited in the European search report are attached.

☒ Additional set(s) of copies of the documents cited in the European search report is (are) enclosed as well.

## REFUND OF THE SEARCH FEE

If applicable under Article 10 Rules relating to fees, a separate communication from the Receiving Section on the refund of the search fee will be sent later.



1110 PAGE BLANK (USP10)





European Patent  
Office

**SUPPLEMENTARY  
EUROPEAN SEARCH REPORT**

Application Number  
EP 99 94 0687

DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category	Citation of document with indication, where appropriate, of relevant passages	Relevant to claim	CLASSIFICATION OF THE APPLICATION (Int.Cl.7)
E	EP 0 970 799 A (DAIKIN IND LTD) 12 January 2000 (2000-01-12) * page 5, line 9 - page 5, line 28; figures 1-3 * * page 1, line 5 - page 1, line 10 * ---	1-7	B29C67/04
X	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 018, no. 220 (M-1595), 20 April 1994 (1994-04-20) & JP 06 015663 A (NITTO DENKO CORP), 25 January 1994 (1994-01-25) * abstract *	5-7	
X	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 016, no. 503 (M-1326), 16 October 1992 (1992-10-16) & JP 04 185426 A (NIPPON VALQUA IND LTD), 2 July 1992 (1992-07-02) * abstract *	5-7	
A	DE 15 04 174 A (DEUTSCHE EDELSTAHLWERKE AG) 14 August 1969 (1969-08-14) * page 2, paragraph 3 - page 3, paragraph 2 *	5-7	TECHNICAL FIELDS SEARCHED (Int.Cl.7) B29C
A	US 5 032 335 A (WILSON DAVID) 16 July 1991 (1991-07-16) * the whole document *	5-7	
A	DE 17 04 281 A (RUHRCHEMIE AG) 6 May 1971 (1971-05-06) * the whole document *	5-7	
A	GB 1 027 712 A (BTR INDUSTRIES LTD) 27 April 1966 (1966-04-27) * the whole document *	5-7	
The supplementary search report has been based on the last set of claims valid and available at the start of the search.			
Place of search <b>MUNICH</b>		Date of completion of the search <b>16 November 2001</b>	Examiner <b>Schweissguth, M</b>
<b>CATEGORY OF CITED DOCUMENTS</b> X : particularly relevant if taken alone Y : particularly relevant if combined with another document of the same category A : technological background O : non-written disclosure P : intermediate document T : theory or principle underlying the invention E : earlier patent document, but published on, or after the filing date D : document cited in the application L : document cited for other reasons ----- & : member of the same patent family, corresponding document			

2

EPO FORM 1503 03/82 (P04C04)

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

**ANNEX TO THE EUROPEAN SEARCH REPORT  
ON EUROPEAN PATENT APPLICATION NO.**

EP 99 94 0687

This annex lists the patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned European search report. The members are as contained in the European Patent Office EDP file on  
The European Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.

16-11-2001

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0970799 A	12-01-2000	EP 0970799 A1	12-01-2000
		US 6287497 B1	11-09-2001
		CN 1250410 T	12-04-2000
		WO 9841386 A1	24-09-1998
JP 06015663 A	25-01-1994	NONE	
JP 04185426 A	02-07-1992	JP 2877944 B2	05-04-1999
DE 1504174 A	14-08-1969	DE 1504174 A1	14-08-1969
US 5032335 A	16-07-1991	DE 69014887 D1	19-01-1995
		DE 69014887 T2	06-07-1995
		EP 0482082 A1	29-04-1992
		JP 5500780 T	18-02-1993
		WO 9100887 A1	24-01-1991
DE 1704281 A	06-05-1971	DE 1704281 A1	06-05-1971
GB 1027712 A	27-04-1966	NONE	

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PCT

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Assistant Commissioner for Patents  
United States Patent and Trademark  
Office  
Box PCT  
Washington, D.C.20231  
ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 05 May 2000 (05.05.00)	
International application No. PCT/JP99/04832	Applicant's or agent's file reference 661406
International filing date (day/month/year) 07 September 1999 (07.09.99)	Priority date (day/month/year) 18 September 1998 (18.09.98)
Applicant ISHIWARI, Kazuo et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

12 April 2000 (12.04.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was

☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer Diana Nissen Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	--

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**